

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM  
GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 12 NOV 2004

PCT

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT  
(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts O.Z. 6070-WO	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/07543	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 11.07.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 22.08.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C11/09		
Anmelder OXENO OLEFINCHEMIE GMBH et al		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.


2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen; und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 86.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  09.12.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  12.11.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Kardinal, S  Tel. +31 70 340-3483



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-15 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-9 eingegangen am 27.08.2004 mit Schreiben vom 25.08.2004

**Zeichnungen, Blätter**

1/3-3/3 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbaren **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/07543

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
- |                                |                    |
|--------------------------------|--------------------|
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-9  |
|                                | Nein: Ansprüche    |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-9  |
|                                | Nein: Ansprüche    |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-9 |
|                                | Nein: Ansprüche:   |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

• 1. Änderungen

Die mit Schreiben vom 25.08.2004 eingereichten neuen Ansprüche 1-9 stehen im Einklang mit Artikel 34(2)(b) PCT:

Die zusätzliche Merkmale im neuen Anspruch 1 d) bezüglich der Auftrennung des Spaltproduktes in einer Kolonne und Rückführung des erhaltenen Sumpfproduktes basieren auf Seite 5, Zeile 12-17 und Seite 9, Zeile 21-30 der ursprünglichen Beschreibung.

Die Abtrennung von C4-Oligomeren, MSBE und TBA aus der Fraktion a) (neue Ansprüche 2 und 3) ist durch Seite 5, Zeile 11 und Seite 6, Zeile 28 bis Seite 7, Zeile 5 der ursprünglichen Beschreibung gestützt.

2. Es wird auf das folgenden Dokument verwiesen:

D1: US5567860

3. Neuheit

3.1 Das Dokument D1 zeigt (siehe Abb. 1 und Spalte 10 sowie die Beispiele) ein Verfahren zur Herstellung von Isobuten durch sauer katalysierte Spaltung von Methyl-tert.-butylether (MTBE), in dem ein Einsatzgemisch, welches MTBE, MSBE, Dimethylether (DME), C4-Kohlenwasserstoffe, Methanol, TBA und C4-Oligomere enthält, destillativ in ein Kopfprodukt enthaltend C4-Kw, MeOH, DME, ein Sumpfprodukt aus C4-Oligomeren und einen Seitenstrom (48) enthaltend MTBE und MSBE aufgetrennt wird (siehe Entbutanisierungskolonne 24).

Das im Seitenstrom (48) enthaltene MTBE wird in einer Spaltungszone (52) in Methanol und Isobuten gespalten. Ein isobutenhaltiger Strom wird in Isobuten-Kolonne (58) als Kopfprodukt abgetrennt und kann dann weiter aufgereinigt werden. Die im Sumpfprodukt der Isobuten-Kolonne (58) enthaltenen Produkte (MTBE, MSBE, Methanol) werden in einer weiteren Kolonne (62) in ein MTBE,

MSBE und Methanol enthaltendes Kopfprodukt und ein Methanol enthaltendes Sumpfprodukt aufgetrennt. Das Kopfprodukt wird in Kolonne 24 zurückgeführt und das Methanol enthaltende Sumpfprodukt einer vorgelagerten Veretherungseinheit (20) zugeführt (siehe Abb. 1 und Spalte 10, Zeile 34-53).

3.2 Der Gegenstand des Anspruchs 1 unterscheidet sich von diesem bekannten Verfahren im wesentlichen dadurch, daß bei der Auftrennung des Einsatzgemisches in die Fraktionen a) und b) keine getrennte Abnahme eines Sumpfproduktes (C4-Oligomere) und eines Seitenstroms (MTBE, MSBE) erfolgt sondern die Fraktion a) diese Produkte zusammen enthält. Außerdem wird das MTBE und Methanol-haltige Sumpfprodukt der Auftrennung des Spaltproduktes aus c) in das Einsatzgemisch zurückgeführt, d. h. eine Abtrennung des Methanols aus dem Sumpfprodukt in einer weiteren Kolonne wie in D1 (62) findet nicht statt.

3.3 Der Gegenstand des Anspruchs 1 und der davon abhängigen Ansprüche 2-9 ist somit neu (Artikel 33(2) PCT).

#### 4. Erfinderische Tätigkeit

Das Dokument D1 wird als nächstliegender Stand der Technik gegenüber dem Gegenstand des Anspruchs 1 angesehen.

Durch die Rückführung des bei der Auftrennung des Spaltproduktes aus c) erhältlichen Methanol-haltigen Sumpfproduktes in das Einsatzgemisch erfolgt die Abtrennung des bei der MTBE-Spaltung entstehenden Methanols in der Kolonne zur Fraktionierung des Einsatzgemisches. Eine vorhergehende Abtrennung des Methanols aus dem Sumpfprodukt durch einen weiteren Trennungsschritt entfällt.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, ein alternatives Verfahren zur Herstellung von Isobuten aus MTBE bereitzustellen.

Es war aus dem Stand der Technik weder bekannt noch nahegelegt, das in D1 beschriebene Verfahren dahingehend zu modifizieren, daß die Abtrennung des Spaltmethanols durch Rückführung des Sumpfproduktes der Auftrennung des Spaltproduktes aus c) in das Einsatzgemisch in der Kolonne zur Fraktionierung des Einsatzgemisches erfolgt.

Die im unabhängigen Anspruch 1 und den davon abhängigen Ansprüchen 2-9 der vorliegenden Anmeldung vorgeschlagene Lösung beruht somit auf einer erfinderischen Tätigkeit (Artikel 33(3) PCT).

**5. Anmerkung**

Durch die derzeitige Formulierung der abhängigen Ansprüchen 2 und 3 wird der Eindruck geweckt, daß die C4-Oligomere, MSBE und TBA aus der Fraktion a) vollständig abgetrennt werden, wohingegen aus den entsprechenden Passagen der Beschreibung (Seite 5, Zeile 11 und Seite 6, Zeile 28 bis Seite 7, Zeile 5) hervorgeht, daß nur ein Teil dieser Produkte (Hochsieder) abgetrennt wird.

**Patentansprüche:**

1. Verfahren zur Herstellung von Isobuten durch sauer katalysierte Spaltung von Methyl-tert.-butylether (MTBE),

dadurch gekennzeichnet,

dass ein Einsatzgemisch, enthaltend MTBE, C<sub>4</sub>-, C<sub>5</sub>-Kohlenwasserstoffe, Methanol, Methyl-sek.butylether, TBA und C<sub>4</sub>-Oligomere

a) in eine Fraktion a), enthaltend MTBE, MSBE, TBA und C<sub>4</sub>-Oligomere und

b) in eine Fraktion b), enthaltend C<sub>4</sub>-, C<sub>5</sub>-Kohlenwasserstoffe, MTBE und Methanol aufgetrennt,

c) das in der Fraktion a) enthaltende MTBE in Methanol und Isobuten gespalten und

d) das Spaltprodukt aus c), welches nicht umgesetzten MTBE, Methanol, Isobuten, Leicht- und Hochsieder enthält, in einer Kolonne in ein Isobuten-haltiges Kopfprodukt und ein Sumpfprodukt, das den nicht umgesetzten MTBE und den größten Teil des Spaltmethanols enthält, aufgetrennt und das Sumpfprodukt in das Einsatzgemisch zurückgeführt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1,

dadurch gekennzeichnet,

dass die C<sub>4</sub>-Oligomere, MSBE und TBA aus der Fraktion a) durch eine Destillationsstufe als Sumpfprodukt abgetrennt werden.

3. Verfahren nach Anspruch 1,

dadurch gekennzeichnet,

dass die C<sub>4</sub>-Oligomere, MSBE und TBA aus der Fraktion a) durch einen Ausschleusestrom abgetrennt werden.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3,

dadurch gekennzeichnet,

dass der aus dem Spaltprodukt aus c) abgetrennte Isobuten-haltige Strom in einer Reinigungskolonie in ein Sumpfprodukt, enthaltend reines Isobuten und ein Kopfprodukt, enthaltend Isobuten und leichtflüchtige Nebenprodukte fraktioniert wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3,

dadurch gekennzeichnet,

5 dass der aus dem Spaltprodukt aus c) abgetrennte Isobuten-haltige Strom mit Wasser gewaschen und anschließend in einer Reinigungskolonie in ein Sumpfprodukt, enthaltend reines Isobuten und ein Kopfprodukt, enthaltend Isobuten und leichtflüchtige Nebenprodukte fraktioniert wird.

6. Verfahren nach Anspruch 4 oder 5,

10 dadurch gekennzeichnet,

dass das im Isobuten-haltigen Strom enthaltene Wasser mit einem Dekanter entfernt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 4 bis 6,

dadurch gekennzeichnet,

15 dass das im Isobuten-haltigen Strom enthaltene Wasser durch einen Dekanter, der im Kopf der Reinigungskolonie angeordnet ist, entfernt wird.

8. Verfahren nach Anspruch 4 bis 7,

dadurch gekennzeichnet,

20 dass das im Isobuten-haltigen Strom enthaltene Wasser durch einen Dekanter, der als Seitenabzug der Reinigungskolonie angeordnet ist, entfernt wird.

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8,

dadurch gekennzeichnet,

25 dass die Spaltung gemäß c) und die Abtrennung des Isobutens gemäß d) des in Fraktion a) enthaltenen MTBE in einer Reaktivdestillationskolonie durchgeführt wird.

g